

**SYNTHESIS OF LiFePO<sub>4</sub> AND MANUFACTURE OF NONAQUEOUS ELECTROLYTE BATTERY**

**Patent number:** JP2000294238  
**Publication date:** 2000-10-20  
**Inventor:** RI KOKUKA; YAMADA ATSUO  
**Applicant:** SONY CORP  
**Classification:**  
- **international:** H01M4/58; C01G49/00; H01M4/02; H01M10/40  
- **european:**  
**Application number:** JP19990099409 19990406  
**Priority number(s):**

**Report a data error here**

**Abstract of JP2000294238**

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To enable synthesis at a low temperature without generating acid gas, and to realize high capacity by using at least iron oxalate as a synthetic raw material in a mixing process.

**SOLUTION:** Iron oxalate is used as a Fe source in a synthetic raw material of LiFePO<sub>4</sub> used as a positive electrode active material. The iron oxalate can quickly advance synthetic reaction since a decomposition temperature is low, and does not damage a reaction device since acid gas is not generated at reaction. As the synthetic raw material, for example, the iron oxalate, ammonium hydrogenphosphate and lithium carbonate are mixed in the prescribed ratio to form a synthetic precursor. The LiFePO<sub>4</sub> is synthesized by heating the precursor in an inert gas atmosphere. A synthetic temperature is desirably set to a range of 350 deg.C to 790 deg.C. Air included in the precursor is desirably removed by applying deaerating processing before heating/synthesizing the precursor.

---

Data supplied from the esp@cenet database - Patent Abstracts of Japan

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号  
特開2000-294238  
(P2000-294238A)

(43) 公開日 平成12年10月20日 (2000. 10. 20)

(51) IntCl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テ-マ-ト* (参考)
H 0 1 M 4/58		H 0 1 M 4/58	4 G 0 0 2
C 0 1 G 49/00		C 0 1 G 49/00	A 5 H 0 0 3
H 0 1 M 4/02		H 0 1 M 4/02	C 5 H 0 1 4
10/40		10/40	Z 5 H 0 2 9

審査請求 未請求 請求項の数4 O L (全 8 頁)

(21) 出願番号 特願平11-99409

(22) 出願日 平成11年4月6日 (1999. 4. 6)

(71) 出願人 000002185

ソニー株式会社

東京都品川区北品川6丁目7番35号

(72) 発明者 李 国華

東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニ  
ー株式会社内

(72) 発明者 山田 淳夫

東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニ  
ー株式会社内

(74) 代理人 100067736

弁理士 小池 晃 (外2名)

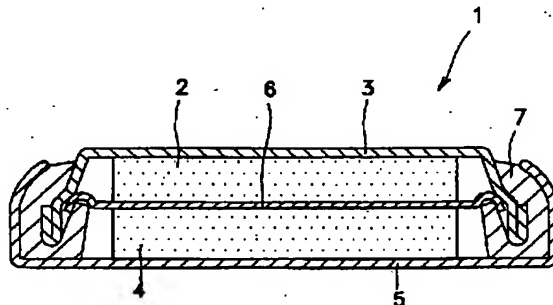
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】  $\text{LiFePO}_4$  の合成方法及び非水電解質電池の製造方法

(57) 【要約】

【課題】 酸性ガスを発生することなく、より低温で合成され、かつ、高容量を有する。

【解決手段】 合成原料となる複数の物質を混合して前駆体とする混合工程と、前駆体を加熱して反応させる加熱工程とを有し、混合工程において、合成原料として少なくともシユウ酸鉄を用いる。



(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-294238

(P2000-294238A)

(43) 公開日 平成12年10月20日(2000. 10. 20)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>

識別記号

F I、

テーマコード(参考)

H 0 1 M 4/58

H 0 1 M 4/58

4 G 0 0 2

C 0 1 G 49/00

C 0 1 G 49/00

A 5 H 0 0 3

H 0 1 M 4/02

H 0 1 M 4/02

C 5 H 0 1 4

10/40

10/40

Z 5 H 0 2 9

審査請求 未請求 請求項の数 4 O L (全 8 頁)

(21) 出願番号

特願平11-99409

(71) 出願人 000002185

ソニー株式会社

東京都品川区北品川6丁目7番35号

(22) 出願日

平成11年4月6日(1999. 4. 6)

(72) 発明者 李 国華

東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニ  
ー株式会社内

(72) 発明者 山田 淳夫

東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニ  
ー株式会社内

(74) 代理人 100067736

弁理士 小池 晃 (外2名)

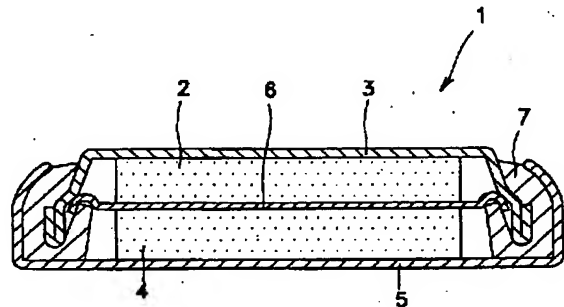
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】  $\text{LiFePO}_4$  の合成方法及び非水電解質電池の製造方法

(57) 【要約】

【課題】 酸性ガスを発生することなく、より低温で合成され、かつ、高容量を有する。

【解決手段】 合成原料となる複数の物質を混合して前駆体とする混合工程と、前駆体を加熱して反応させる加熱工程とを有し、混合工程において、合成原料として少なくともシュウ酸鉄を用いる。



度が4.2 g/cm<sup>3</sup>であるから、LiFePO<sub>4</sub>は、LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub>と比較して電圧、体積密度ともに1割程度小さいことになる。このため、同じ120mAh/gの容量を得ようとする、LiFePO<sub>4</sub>は、LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub>よりも重量エネルギー密度で1割以上、体積エネルギー密度で2割以上小さくなってしまふ。

【0013】従って、LiFePO<sub>4</sub>でLiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub>と同等レベルあるいはそれ以上のエネルギー密度を実現するためには、140mAh/gあるいはそれ以上の容量が要求されるが、LiFePO<sub>4</sub>でこのような高容量はこれまで実現されていない。

【0014】また、LiFePO<sub>4</sub>は、従来、合成原料を還元環境下にて800℃という比較的高温で加熱されることにより合成されている。合成温度が高いと、その分エネルギーを消費することになり、また、反応装置等に与える負荷も大きい。

【0015】合成原料中のFe源としては、リン酸第一鉄(Fe<sub>3</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>·8H<sub>2</sub>O)や酢酸鉄(Fe(CH<sub>3</sub>COO)<sub>2</sub>)などの2価の鉄の塩が用いられている。リン酸第一鉄は反応性が低いため、低温での合成が困難である。また、酢酸鉄は低温での合成は可能であるが、合成反応中に酸性ガスが発生するという問題がある。この酸性ガスは、反応装置等を傷める原因となる等、周囲に与える影響が大きい。

【0016】本発明は上述したような従来の実情に鑑みて提案されたものであり、酸性ガスを発生することなく、より低温で合成され、かつ、高容量を有するLiFePO<sub>4</sub>が得られるLiFePO<sub>4</sub>の合成方法及びそのLiFePO<sub>4</sub>を電池活物質として用いた非水電解質電池の製造方法を提供することを目的とする。

【0017】

【課題を解決するための手段】本発明のLiFePO<sub>4</sub>の合成方法は、LiFePO<sub>4</sub>を合成するに際し、合成原料となる複数の物質を混合して前駆体とする混合工程と、上記混合工程で得られた上記前駆体を加熱して反応させる加熱工程とを有し、上記混合工程において、上記合成原料として少なくともシュウ酸鉄を用いることを特徴とする。

【0018】上述したような本発明に係るLiFePO<sub>4</sub>の合成方法では、シュウ酸鉄を合成原料として用いているので、反応時において周囲に影響を与えるようなガスが発生しない。

【0019】また、本発明の非水電解質電池の製造方法は、リチウムを可逆的にドーブ・脱ドーブ可能なLiFePO<sub>4</sub>を正極活物質として有する正極と、上記正極と対向して配されリチウムを可逆的にドーブ・脱ドーブ可能な負極活物質を有する負極と、上記正極と上記負極との間に介在される非水電解質とを備えた非水電解質電池の製造方法であって、上記LiFePO<sub>4</sub>を合成するに際し、合成原料となる複数の物質を混合して前駆体とす

る混合工程と、上記混合工程で得られた上記前駆体を加熱して反応させる加熱工程とを有し、上記混合工程において、上記合成原料として少なくともシュウ酸鉄を用いることを特徴とする。

【0020】上述したような本発明に係る非水電解質電池の製造方法では、LiFePO<sub>4</sub>を合成するに際し、シュウ酸鉄を合成原料として用いているので、反応時において周囲に影響を与えるようなガスが発生しない。そして、このLiFePO<sub>4</sub>は、粒子内でのリチウムの拡散が十分に行われるため、高容量を有する非水電解質電池が実現される。

【0021】

【発明の実施の形態】以下、本発明の実施の形態について説明する。

【0022】本発明を適用して製造される非水電解液電池の一構成例を図1に示す。この非水電解液電池1は、負極2と、負極2を収容する負極缶3と、正極4と、正極4を収容する正極缶5と、正極4と負極2との間に配されたセパレータ6と、絶縁ガセット7とを備え、負極缶3及び正極缶5内に非水電解液が充填されてなる。

【0023】負極2は、負極活物質となる例えば金属リチウム箔からなる。また、負極活物質として、リチウムをドーブ・脱ドーブ可能な材料を用いる場合には、負極2は、負極集電体上に、上記負極活物質を含有する負極活物質層が形成されてなる。負極集電体としては、例えばニッケル箔等が用いられる。

【0024】リチウムをドーブ・脱ドーブ可能な負極活物質としては、金属リチウム、リチウム合金、リチウムがドーブされた導電性高分子、層状化合物(炭素材料や金属酸化物など)が用いられている。

【0025】負極活物質層に含有される結合剤としては、この種の非水電解液電池の負極活物質層の結合剤として通常用いられている公知の樹脂材料等を用いることができる。

【0026】負極缶3は、負極2を収容するものであり、また、非水電解液電池1の外部負極となる。

【0027】正極4は、正極集電体上に、正極活物質を含有する正極活物質層が形成されてなる。この非水電解液電池1では、正極活物質として、後述する方法により合成されるオリビン型のLiFePO<sub>4</sub>を用いる。また、正極集電体としては、例えばアルミニウム箔等が用いられる。

【0028】正極活物質層に含有される結合剤としては、この種の非水電解液電池の正極活物質層の結合剤として通常用いられている公知の樹脂材料等を用いることができる。

【0029】正極缶5は、正極4を収容するものであり、また、非水電解液電池1の外部正極となる。

【0030】セパレータ6は、正極4と、負極2とを離間させるものであり、この種の非水電解液電池のセパレ

ータとして通常用いられている公知の材料を用いることができ、例えばポリプロピレンなどの高分子フィルムが用いられる。また、リチウムイオン伝導度とエネルギー密度との関係から、セパレータの厚みはできるだけ薄いことが必要である。具体的には、セパレータの厚みは例えば50 $\mu$ m以下が適当である。

【0031】絶縁ガasket7は、負極缶3に組み込まれ一体化されている。この絶縁ガasket7は、負極缶3及び正極缶5内に充填された非水電解液の漏出を防止するためのものである。

【0032】非水電解液としては、非プロトン性非水溶媒に電解質を溶解させた溶液が用いられる。

【0033】非水溶媒としては、例えばプロピレンカーボネート、エチレンカーボネート、ブチレンカーボネート、ビニレンカーボネート、 $\gamma$ -ブチラクトン、スルホラン、1,2-ジメトキシエタン、1,2-ジエトキシエタン、2-メチルテトラヒドロフラン、3-メチル1,3-ジオキソラン、プロピオン酸メチル、酪酸メチル、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、ジプロピルカーボネート等を使用することができる。特に、電圧安定性の点からは、プロピレンカーボネート、ビニレンカーボネート等の環状カーボネート類、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、ジプロピルカーボネート等の鎖状カーボネート類を使用することが好ましい。また、このような非水溶媒は、1種類を単独で用いてもよいし、2種類以上を混合して用いてもよい。

【0034】また、非水溶媒に溶解させる電解質としては、例えば、 $\text{LiPF}_6$ 、 $\text{LiClO}_4$ 、 $\text{LiAsF}_6$ 、 $\text{LiBF}_4$ 、 $\text{LiCF}_3\text{SO}_3$ 、 $\text{LiN}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2$ 等のリチウム塩を使用することができる。これらのリチウム塩の中でも、 $\text{LiPF}_6$ 、 $\text{LiBF}_4$ を使用することが好ましい。

【0035】つぎに、上述したような非水電解液電池1の製造方法について説明する。

【0036】まず、正極活物質として用いられるオリビン型 $\text{LiFePO}_4$ を合成する。本実施の形態においては、 $\text{LiFePO}_4$ の合成原料中の鉄源として、シュウ酸鉄を用いる。

【0037】シュウ酸鉄は、 $\text{LiFePO}_4$ の合成原料として従来用いられてきたリン酸鉄等に比べて分解温度が低い。そのため、シュウ酸鉄を合成原料として用いることで、 $\text{LiFePO}_4$ の合成反応を迅速に進めることができる。また、 $\text{LiFePO}_4$ の合成原料としてシュウ酸鉄を用いることで、反応時に、酸性ガス等、周囲に影響を与えるようなガスが発生しないため、反応装置等を傷めることがない。

【0038】 $\text{LiFePO}_4$ を合成するには、まず、合成原料として例えばシュウ酸鉄( $\text{FeC}_2\text{O}_4$ )と、リン酸水素アンモニウム( $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ )と、炭酸リチウム( $\text{Li}_2\text{CO}_3$ )とを所定比で混合して合成前駆体とす

る。ここで、合成原料の混合は十分に行う必要がある。合成原料を十分に混合することで、各原料が均一に混ざり合い、接触点が増えるため、従来よりも低い温度で $\text{LiFePO}_4$ を合成することが可能になる。

【0039】次に、この合成前駆体を窒素等の不活性ガス雰囲気中で加熱することにより $\text{LiFePO}_4$ が合成される。このとき、シュウ酸鉄を用いているため、合成反応が迅速に進むほか、反応時に酸性ガスが発生せず、周囲へ影響を与えることがない。

【0040】また、この $\text{LiFePO}_4$ の合成温度は、350 $^{\circ}\text{C}$ 以上、790 $^{\circ}\text{C}$ 以下の範囲とすることが好ましい。

【0041】従来、 $\text{LiFePO}_4$ は例えば800 $^{\circ}\text{C}$ という比較的高温で合成されていた。合成温度が高いと、その分エネルギーを消費することになり、また、反応装置等に与える負荷も大きかった。

【0042】上述したように、 $\text{LiFePO}_4$ の合成に際し、シュウ酸鉄を合成原料として用いることで、例えば300 $^{\circ}\text{C}$ という、従来の800 $^{\circ}\text{C}$ に比べてはるかに低い温度でも $\text{LiFePO}_4$ を合成することが可能となった。

【0043】そして、例えば300 $^{\circ}\text{C}$ という比較的低い温度でも $\text{LiFePO}_4$ を合成することができるようになったことから、従来に比べてより広い温度範囲で $\text{LiFePO}_4$ を合成することが可能となり、合成温度の選択の幅が広がった。そこで、本発明者は、 $\text{LiFePO}_4$ の合成温度と容量との関係に着目し、好ましい合成温度について検討した。

【0044】その結果、 $\text{LiFePO}_4$ の合成温度は350 $^{\circ}\text{C}$ 以上、790 $^{\circ}\text{C}$ 以下の範囲の温度とすることが好ましいことがわかった。 $\text{LiFePO}_4$ の合成温度が350 $^{\circ}\text{C}$ よりも低いと、化学反応と結晶化が十分に進まず、均一な $\text{LiFePO}_4$ を得ることができない。また、 $\text{LiFePO}_4$ の合成温度が790 $^{\circ}\text{C}$ よりも高いと、結晶化が過剰に進行してしまい、 $\text{LiFePO}_4$ 粒子内でのリチウムの拡散が十分に起こらず、十分に高い容量を得ることができない。従って、350 $^{\circ}\text{C}$ 以上、790 $^{\circ}\text{C}$ 以下の範囲で $\text{LiFePO}_4$ を合成することで、均一で単相の $\text{LiFePO}_4$ を得ることができ、従来の非水電解質電池の120mAh/gを上回る高容量を実現することができる。

【0045】さらに、より好ましい $\text{LiFePO}_4$ の合成温度は、450 $^{\circ}\text{C}$ 以上、700 $^{\circ}\text{C}$ 以下の範囲である。450 $^{\circ}\text{C}$ 以上、700 $^{\circ}\text{C}$ 以下の範囲で $\text{LiFePO}_4$ を合成することで、 $\text{LiFePO}_4$ 理論容量である170mAh/gに迫る高い実容量を得ることができる。

【0046】以上、説明したような方法では、シュウ酸鉄を合成原料として用いることにより、従来よりも低い温度で、単相の $\text{LiFePO}_4$ を合成することができる。また、この方法では、合成原料としてシュウ酸鉄を

用いるため、合成反応時に酸性ガスが発生せず、周囲へ与える影響がほとんどない。

【0047】そして、以上のようにして得られた $\text{LiFePO}_4$ を正極活物質として用いた非水電解液電池1は、例えばつぎのようにして製造される。

【0048】負極2としては、まず、負極活物質と結着剤とを溶媒中に分散させてスラリーの負極合剤を調製する。次に、得られた負極合剤を集電体上に均一に塗布、乾燥して負極活物質層を形成することにより負極2が作製される。上記負極合剤の結着剤としては、公知の結着剤を用いることができるほか、上記負極合剤に公知の添加剤等を添加することができる。また、負極活物質となる金属リチウムをそのまま負極2として用いることもできる。

【0049】正極4としては、まず、正極活物質となる $\text{LiFePO}_4$ と結着剤とを溶媒中に分散させてスラリーの正極合剤を調製する。次に、得られた正極合剤を集電体上に均一に塗布、乾燥して正極活物質層を形成することにより正極4が作製される。上記正極合剤の結着剤としては、公知の結着剤を用いることができるほか、上記正極合剤に公知の添加剤等を添加することができる。

【0050】非水電解液は、電解質塩を非水溶媒中に溶解することにより調製される。

【0051】そして、負極2を負極缶3に収容し、正極4を正極缶5に収容し、負極2と正極4との間に、ポリプロピレン製多孔質膜等からなるセパレータ6を配する。負極缶3及び正極缶5内に非水電解液を注入し、絶縁ガスケット7を介して負極缶3と正極缶5とをかしめて固定することにより、非水電解液電池1が完成する。

【0052】上述したような非水電解液電池1の製造方法では、従来よりも低い温度で、単相の $\text{LiFePO}_4$ を合成することができる。そして、この $\text{LiFePO}_4$ を正極活物質として用いて作製された非水電解液電池1は、リチウムのドーブ・脱ドーブが良好に行われて、高い容量を有し、かつ、サイクル特性にも優れたものとなる。

【0053】なお、上述した本実施の形態においては、 $\text{LiFePO}_4$ を合成するに際し、当該 $\text{LiFePO}_4$ の合成原料となる化合物の粉末を混合して加熱する、固相反応による方法を例に挙げて説明したが、本発明はこれに限定されるものではなく、固相反応以外の種々の化学合成法を適用することができる。

【0054】なお、上述した $\text{LiFePO}_4$ の合成方法において、合成前駆体を加熱合成する前に、当該合成前駆体中に対して脱空気処理を施して、当該合成前駆体中に含有される空気を除去することが好ましい。

【0055】合成前駆体中に空気が残存していると、 $\text{LiFePO}_4$ の合成時に、2価の鉄化合物であるシュウ酸鉄中の $\text{Fe}^{2+}$ が、当該空気中の酸素によって酸化されて $\text{Fe}^{3+}$ となってしまう。その結果、不純物である3価

の鉄化合物が生成物の $\text{LiFePO}_4$ 中に混入してしまう。脱空気処理により、合成前駆体中に含まれる空気を除去することで、シュウ酸鉄中の $\text{Fe}^{2+}$ の酸化を防ぐことができる。その結果、3価の鉄化合物が生成物の $\text{LiFePO}_4$ 中に混入せず、単相の $\text{LiFePO}_4$ を得ることができる。

【0056】また、 $\text{LiFePO}_4$ の構成元素としては $\text{LiFePO}_4$ を基本組成としていればよく、上述したような350℃以上、790℃以下の温度範囲で反応と結晶化が進行する限り、 $\text{LiFePO}_4$ に $\text{Li}$ 、 $\text{Fe}$ 、 $\text{P}$ 、 $\text{O}$ 以外の元素が添加あるいは一部が置換されていても構わない。

【0057】また、 $\text{LiFePO}_4$ の合成原料としては、上述した化合物以外にも、リチウム源として水酸化リチウム、硝酸リチウム、酢酸リチウム、リン酸リチウム等、種々の原料を用いることができるが、周囲に影響を与えるようなガスが発生せず、かつ比較的低温で合成するためには、反応性の高い原料を用いることが好ましい。

【0058】上述したような本実施の形態に係る非水電解液電池1は、円筒型、角型、コイン型、ボタン型等、その形状については特に限定されることはなく、また、薄型、大型等の種々の大きさにすることができる。

【0059】なお、上述した実施の形態では、非水電解質電池として、非水電解液を用いた非水電解液電池1を例に挙げて説明したが、本発明はこれに限定されるものではなく、非水電解質として、固体電解質や、膨潤溶媒を含有するゲル状の固体電解質を用いた場合にも適用可能である。また、本発明は、一次電池についても二次電池についても適用可能である。

【0060】

【実施例】つぎに、本発明の効果を調べるべく、 $\text{LiFePO}_4$ を合成し、得られた $\text{LiFePO}_4$ を正極活物質として用いて電池を作製し、その特性を評価した実験例について述べる。

【0061】〈実施例1〉まず、 $\text{LiFePO}_4$ を合成した。

【0062】 $\text{LiFePO}_4$ を合成するには、まず、結晶子サイズの大きい原料のリン酸二水素アンモニウム( $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ )を予め十分に粉碎した。次に、シュウ酸鉄二水和物( $\text{FeC}_2\text{O}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ )と、リン酸二水素アンモニウム( $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ )と、炭酸リチウム( $\text{Li}_2\text{CO}_3$ )とを、モル比が2:2:1になるように乳鉢で30分間混合した後、さらにアセトンで溶媒とし直径2mmのジルコニアボールを用いて48時間混合した。

【0063】次に、この混合物を粘土状になるまで乾燥した。その後、窒素気流下、120℃の電気炉で加熱することにより残留アセトンを除去し、極めて均一性の高い合成前駆体を得た。

【0064】次に、この反応前駆体に対して、窒素雰囲気下で300℃、12時間の仮焼きを行った後、窒素雰囲気下、反応前駆体を600℃で24時間加熱することにより $\text{LiFePO}_4$ を合成した。

【0065】そして、上述のようにして得られた $\text{LiFePO}_4$ を正極活物質として用いて電池を作製した。

【0066】まず、正極活物質として乾燥した $\text{LiFePO}_4$ を70重量%と、導電剤としてアセチレンブラックを25重量%と、結着剤としてポリフッ化ビニリデンを5重量%とを、溶媒としてジメチルホルムアミド中に均一に混合してペースト状の正極合剤を調製した。なお、上記ポリフッ化ビニリデンには、アルドリッチ社製の#1300を用いた。

【0067】次に、この正極合剤を集電体となるアルミニウムメッシュ上に塗布し、乾燥アルゴン雰囲気下、100℃で1時間乾燥して正極活物質層を形成した。

【0068】そして、正極活物質層が形成されたアルミニウムメッシュを、直径15.5mmの円板状に打ち抜くことによりペレット状の正極とした。なお、この正極1個には、60mgの活物質が担持されている。

【0069】また、リチウム金属箔を正極と略同形に打ち抜くことにより負極とした。

【0070】また、プロピレンカーボネートとジメチルカーボネートとの等容量混合溶媒に、 $\text{LiPF}_6$ を1mol/lの濃度で溶解させることにより非水電解液を調製した。

【0071】以上のようにして得られた正極を正極缶に収容し、負極を負極缶に収容し、正極と負極との間にセパレータを配した。正極缶及び負極缶内に非水電解液を注入し、正極缶と負極缶とをかしめて固定することにより、2025型のコイン型テストセルを作製した。

【0072】〈実施例2〉反応前駆体の加熱温度を400℃としたこと以外は、実施例と同様にして $\text{LiFePO}_4$ を合成した。

【0073】〈実施例3〉反応前駆体の加熱温度を800℃としたこと以外は、実施例と同様にして $\text{LiFePO}_4$ を合成した。

【0074】つぎに、上述したような方法により合成された $\text{LiFePO}_4$ について、粉末X線回折パターンを測定した。粉末X線回折の測定条件をつぎに示す。

【0075】使用装置：リガクRINT2500回転対陰極

X線： $\text{CuK}\alpha$ ，40kV，100mA

ゴニオメータ：縦型標準、半径185mm

カウンタモノクロメータ：使用

フィルタ：使用しない

スリット幅：

ダイバージェントスリット(DS)=1°

レシービングスリット(RS)=1°

スキャッターリングスリット(SS)=0.15mm

係数装置：シンチレーションカウンタ

測定法：反射法、連続スキャン

走査範囲： $2\theta=10^\circ\sim80^\circ$

スキャンスピード：4°/分

実施例1～実施例3で合成された $\text{LiFePO}_4$ 粉末X線回折パターンを図2に示す。図2から、実施例1～実施例3の $\text{LiFePO}_4$ は、生成物中に $\text{LiFePO}_4$ 以外の不純物の存在は確認されず、単相の $\text{LiFePO}_4$ が得られていることがわかる。これにより、反応前駆体の加熱温度を400℃、600℃及び800℃と変えたとき、いずれの温度でも単相の $\text{LiFePO}_4$ が得られることが確認された。

【0076】また、実施例1のテストセルについて、充放電試験を行った。

【0077】まず、テストセルに対して定電流充電を行い、電池電圧が4.5Vになった時点で、定電流充電から定電圧充電に切り替えて、電圧を4.5Vに保ったまま充電を行った。そして、電流が0.01mA/cm<sup>2</sup>以下になった時点で充電を終了させた。その後、放電を行い、電池電圧が2.0Vまで低下した時点で放電を終了させた。なお、充電、放電ともに常温(23℃)で行い、このときの電流密度は0.12mA/cm<sup>2</sup>とした。

【0078】実施例1の電池についての充放電特性を図3に示す。図3より、実施例1の電池は、3.4V付近に平坦な電位を有しており、理論容量である170mAh/gにせまる163mAh/gという大きな可逆充放電容量を発生していることがわかる。

【0079】また、実施例1の電池について、サイクル回数と充放電容量との関係を図4に示す。図4から、実施例1の電池は、サイクル劣化は0.1%/サイクル以下と極めて小さく、安定した電池特性を有していることがわかる。

【0080】従って、シュウ酸鉄を原料とすることで、従来よりも低い温度で、単相の $\text{LiFePO}_4$ を合成できることがわかった。そして、この単相の $\text{LiFePO}_4$ を正極活物質として用いた電池は、充放電特性、サイクル特性に優れるものとなることがわかった。

【0081】

【発明の効果】本発明の $\text{LiFePO}_4$ の合成方法では、原料としてシュウ酸鉄を用いているので、合成反応が迅速に進むほか、反応時において周囲に影響を与えるようなガスが発生しない。

【0082】そして、本発明では、原料としてシュウ酸鉄を用いて得られた $\text{LiFePO}_4$ を正極活物質として用いることで、大容量を有する非水電解質電池を実現することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明に係る非水電解質電池の一構成例を示す断面図である。

【図2】実施例1～実施例3で合成された $\text{LiFePO}_4$ の粉末X線回折パターンを示す図である。

【図3】実施例1の電池についての充放電特性を示す図である。

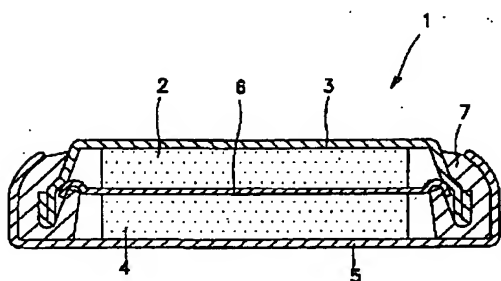
【図4】実施例1の電池について、サイクル回数と充放

電容量との関係を示す図である。

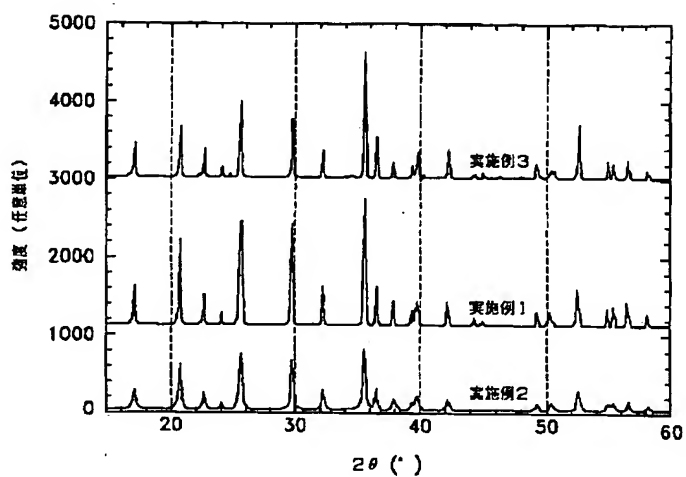
【符号の説明】

1 非水電解質電池、 2 負極、 3 負極缶、 4 正極、 5 正極缶、 6 セパレータ、 7 絶縁ガスケット

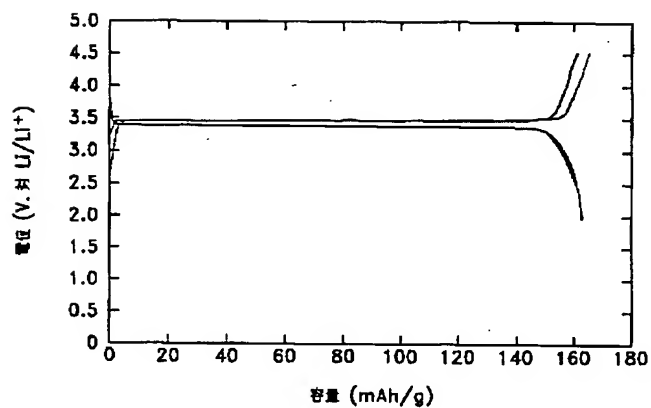
【図1】



【図2】

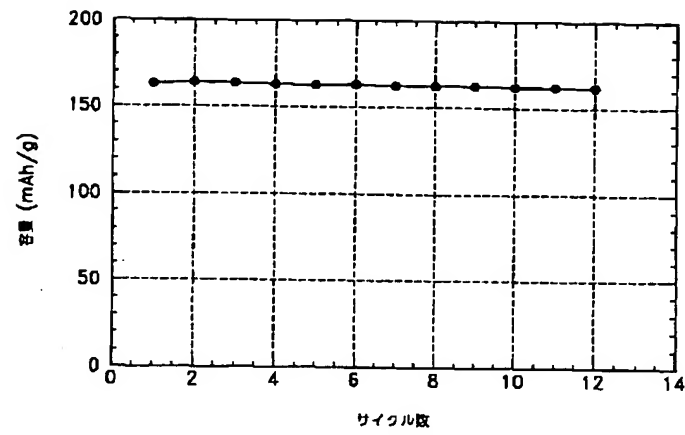


【図3】





【図4】



フロントページの続き

F ターム(参考) 4G002 AA06 AB07 AE05  
 5H003 AA02 BA01 BA03 BB05 BC01  
 5H014 AA01 BB01 BB03 BB06 EE10  
 5H029 AJ03 AK03 AL06 AL12 AM03  
 AM04 AM05 AM07 BJ03 BJ16  
 CJ02 CJ08 CJ12 CJ28 DJ16